

TIARAサイクロトロンにおける重イオンビームの連続均一照射技術の開発

DEVELOPMENT OF A CONTINUOUS UNIFORM IRRADIATION TECHNIQUE OF HEAVY-ION BEAMS AT THE TIARA CYCLOTRON

百合庸介^{#, A)}, 湯山貴裕^{A)}, 吉田健一^{A)}, 石坂知久^{A)}, 石堀郁夫^{A)}, 山本元^{B)}

Yosuke Yuri^{#, A)}, Takahiro Yuyama^{A)}, Ken-ichi Yoshida^{A)}, Tomohisa Ishizaka^{A)}, Ikuo Ishibori^{A)}, Hajime Yamamoto^{B)}

^{A)} Department of Advanced Radiation Technology, Takasaki Advanced Radiation Research Institute,
National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology

^{B)} Functional Products Division, Nitto Denko Corporation

Abstract

A research and development study is in progress on continuous uniform irradiation techniques of high-energy heavy-ion beams toward the mass production of track-etched polymer membranes at the TIARA cyclotron of QST. Up to now, we have developed the basic techniques suitable for irradiation of long polymer films as follows; the formation of a horizontally-wide beam with a uniform intensity distribution by nonlinear focusing of an octupole magnet, and continuous roll-to-roll (RtoR) transfer of thin-film samples. It has been experimentally confirmed that long polyethylene terephthalate films can be continuously irradiated using the RtoR transfer system and track-etched membranes can be produced under various conditions of ion species and samples. We could get a good prospect toward the mass production of track-etched membranes at the TIARA cyclotron.

1. はじめに

有機高分子膜等に高エネルギーの重イオンビームを照射すると、イオンの局所的に高いエネルギー付与のため、その飛跡に沿って高密度の損傷(高分子鎖の切断や分解)が起こる。損傷を受けた箇所は、化学エッチングによる腐食を受けやすいため、適切なエッチング処理により、個々の飛跡を孔径のそろった微細な穿孔として加工することができる。このようにして形成可能な円筒状の穿孔を多数有する膜は、イオン穿孔膜と呼ばれる[1]。

量子科学技術研究開発機構高崎量子応用研究所(量研機構高崎研)のイオン照射研究施設 TIARA[2]では、イオン穿孔膜を機能性材料として量産することを目指し、AVF サイクロトロンを利用したイオンビーム連続均一照射技術の開発を進めている。長尺の高分子フィルムに対して効率的に重イオンビームを照射するために、ロール to ロール(RtoR)方式による試料の連続搬送とビームの均一照射を組み合わせることとした。均一照射の方法としては、交流で駆動する双極電磁石を用いたビーム走査が一般的であるが、この場合、斑なく均一に照射するには、試料の搬送速度よりも十分に速くビームを走査しなければならない。すなわち、高い周波数でビーム走査が可能な偏向電磁石が必要となるとともに、照射の際の調整パラメータが増える。

そこで、我々は静磁場である多重極電磁石の非線形集束によるビーム強度分布均一化[3]を利用した。本手法では、ビームスポット位置が固定され、原理的に照射の均一性は試料の搬送速度に依存しないため、高速搬送に適しており、走査方式のような照射斑が生じにくいと考えられる。現在までに、複数の重イオン種で、また、真空度の異なる照射環境において、水平方向に幅広で均一な強度分布を有するビームを形成し、構築した RtoR

方式の試料搬送装置を用いて高分子フィルムの連続照射とその穿孔化を試験的に達成した。本稿では、主として加速器・ビーム技術的な観点から、これまでの開発過程や照射試験結果の一部をまとめる。

2. ビームラインおよびターゲットの構成

TIARA のサイクロトロン加速器施設の見取り図を Figure 1 に示す。100 μm 程度の厚さの高分子フィルムを貫通して穿孔化できるよう、AVF サイクロトロン(K 値は 110MeV。現在はメインコイルの不具合のため、定格の 60%で運転中[4])により加速された、核子あたりエネルギー

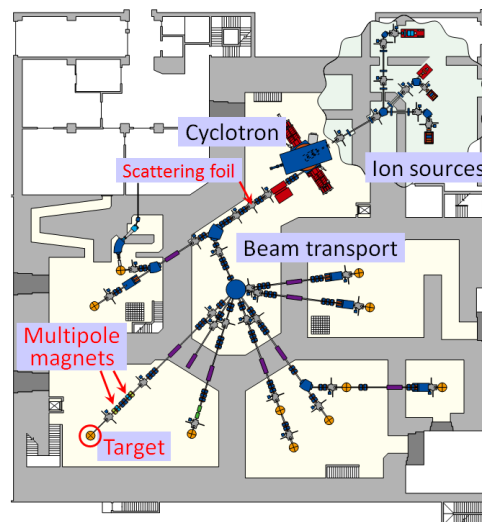


Figure 1: Schematic view of the TIARA AVF cyclotron facility [2]. There are four ECR ion sources, which can generate various ions from proton to osmium. Multipole (sextupole and octupole) magnets have been installed in one of the beam lines for the formation of a 2D large-area or horizontally-wide uniform beam.

[#] yuri.yosuke@qst.go.jp

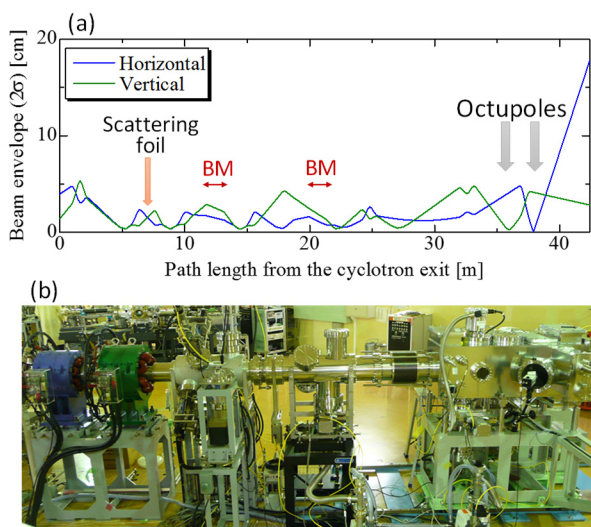


Figure 2: (a) Calculation example of the beam envelope for the uniform beam formation. An rms emittance of 10π mm·mrad has been assumed in both transverse directions. (b) Photograph of the beam line and target vacuum chamber, equipped with multipole magnets and a roll-to-roll transfer system, respectively.

ギーが数 \sim 10MeV/n 程度の ^{40}Ar および ^{129}Xe イオンビームを用いる。

2.1 イオン源

ビーム電流は、作製されるイオン穿孔膜の品質(孔の密度やそのばらつき)に直接関わるパラメータであり、連続照射の間(数 \sim 数十分)、安定であることが求められる。TIARA サイクロトロンが多価重イオン源である ECR イオン源(マイクロ波周波数: 14.5GHz) [2]では、突発的なビーム変動が起こり、ビーム電流が大きく変化することがある。そこで、そのようなビーム変動の発生頻度を減らすため、以下のような対策や調整を行った。

まず、外的要因によるイオン源の状態変化を抑えるため、イオン源の周囲温度を空調機により $\pm 1^\circ\text{C}$ 以内に保つこととした。また、プラズマチャンバー内壁に吸着されたガスの放出によるビーム電流の変化を防ぐため、イオン源立ち上げの数時間後から調整を始めている。 Ar^{8+} 等の低い価数のイオンの場合には、イオン源の性能に余裕があるため、閉じ込め磁場強度やガス圧等を大きく調整することができ、ビーム変動の少ない運転条件を比較的容易に設定することができる。一方、 Ar^{12+} や Xe^{26+} 等では、目標の電流値を達成しながら長時間安定化できるパラメータを見出すことは容易でない。

2.2 ビーム輸送系

高エネルギービームラインには、ステアリング双極電磁石や 4 極電磁石に加えて、横方向ビーム強度分布を変換(均一化)するため、6 極および 8 極電磁石が各 2 台設置されている(ただし、本照射では 6 極電磁石は未使用) [3,5,6]。Figure 2(a)に、サイクロロン出口からターゲット(LB2 ポート)までの横方向ビームエンベロープの計算例を示す。均一度の高いビームを再現性良く形成するため、サイクロロンから引き出されたビームは薄膜

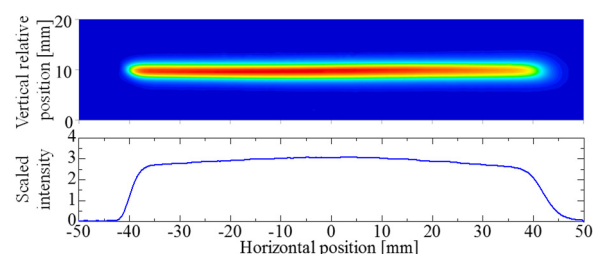


Figure 3: 2D relative intensity distribution of a wide uniform beam formed using octupole nonlinear focusing. A Gafchromic film HD-810 was irradiated with 3.7-MeV/n Ar ion beam of 170 nA for 10 ms. The scaled intensity distribution was obtained from the optical density of the film. The bottom graph shows the 1D profile in the horizontal direction.

に透過させ多重散乱により、あらかじめガウス様分布化する。2 台の 8 極電磁石のうち、上流側の電磁石を使用して、水平方向に偏平で均一な強度分布を有するビームを形成する。このとき、8 極電磁石の非線形集束によって生じるベータトロン振動の結合は均一化を阻害するため、8 極電磁石位置では、水平方向ビームサイズに比べて鉛直方向のそれが十分小さくなるようビームを輸送し、ベータトロン結合を低減させている。

2.3 ターゲット

Figure 2(b)に示すように、ターゲットには汎用的な真空チェンバーが備えられている[7]。最長数百 m 程度の高分子フィルムを一定速度で搬送可能な RtoR 搬送照射装置を製作し、この真空チェンバーに設置した。水平方向に細長い均一ビームに対して、垂直方向に試料を RtoR 搬送することで、長尺の試料を連続的にかつ均一にイオン照射することができる。RtoR 照射中のビーム電流変動の様子を確認するため、イオン源出口からターゲットまでのいくつかの場所でビームの裾野の一部をスリットに当て、相対強度を計測した。さらに、ターゲットで試料を透過し背後のビームダンプ(Al 板)に入るビームの電流も計測した。

RtoR 搬送照射の間、ガスを多く含む大量の高分子フィルム試料を真空チェンバー内で十分な真空度に保つとともに、上流ビームラインの真空度悪化を防ぐためには、試料の前処理および真空排気の設定や時間のコストがかかる。そこで、真空排気や試料交換を効率化するとともに、加速器側への影響を抑えるために、高真空中ではなく、低真空環境でのイオン照射も検討した。そのために、高真空のビームラインからビームを取り出すための Ti 薄膜窓(厚さ $30\mu\text{m}$)を有するビームダクトを作製し、ターゲットチェンバーに取り付けた。これにより、チェンバー内の真空度を $10^{-4}\sim 10^{-5}\text{Pa}$ で調整でき、試料雰囲気制御した照射が可能となった。

3. イオンビーム照射実験

3.1 幅広均一ビーム

Figure 2(a)のようなビーム光学系で水平方向に細長い、幅広均一ビームを形成した。具体的には、まずターゲット

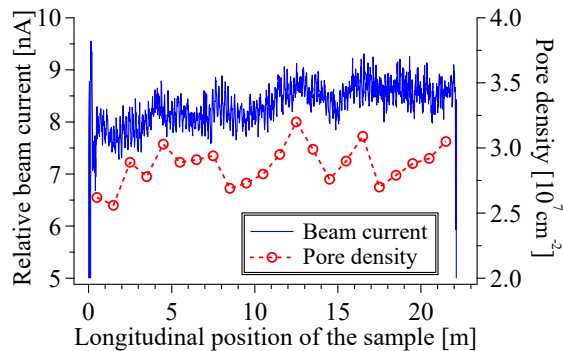


Figure 4: Temporal change in the relative ion-beam current measured at the beam dump behind target sample and the position dependence of the pore density determined from SEM images of the track-etched PET film.

に設置した蛍光体からの発光をカメラでモニターしながら、各種電磁石およびスリットで均一分布や形状を調整し[8,9]、その後 Gafchromic フィルム[10]を用いて強度分布を測定した[11-13]。その解析結果を Figure 3 に示す。3.7MeV/n の Ar イオンビームを Gafchromic フィルム HD-810 に照射した。水平方向の半値全幅は 81mm で、中央付近の幅 75mm における均一度(平均値からのずれの rms 値)は 5%であった。鉛直方向については、多重散乱のためガウス分布でよく近似でき、半値全幅は 3mm であった。これまでに、最大 17cm 幅で 10%以内の十分に高い均一度を有するビームが形成できている[7]。低真空中照射の場合には、Ti 箔や残留ガスとの散乱のために強度分布の端部が伸び緩やかになるが、中央部は同程度の均一度でビーム形成が可能である。

なお、RtoR 照射における均一度は、ビーム電流や試料搬送速度の変動によるばらつきがこれに加わる。

3.2 高分子フィルムの RtoR 照射

次に、形成した幅広均一ビームを用いた、長尺フィルムの RtoR 照射の結果の一例を Figures 4~6 に示す。用いたビームは、3.6MeV/n の Xe イオンである。水平方向の半値全幅は 100mm (Figure 5)に、電流は 2nA となるよう調整した。試料は、厚さ 25 μ m ポリエチレンテレフタレート (PET) フィルムであり、高真空中で毎分 0.52m の速度で RtoR 搬送し 42 分間イオン照射を行った。

照射した試料はエッチング処理により穿孔化し、長手方向の各場所について走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いて視野内に見える穿孔 (Figure 6) の数から穿孔密度を求めた。連続照射中のビーム電流変動は、ターゲットチャンバーのビームダンプにおいて試料を透過したビームの電流値を測定することで追跡した。それらをまとめた結果を Figure 4 に示す。測定されたビーム電流値には、0.1nA オーダーのノイズが含まれていた。このノイズは、試料の RtoR 搬送を停止すると消えることから、搬送に起因するものと考えられる。連続照射中の突発的なビーム変動は見られなかったものの、最終的には電流は約 10%増加した。それに伴って穿孔密度も変化しており、電流変動と同じ傾向を示すことが実際に確かめられた。

Figure 5 には、RtoR 照射開始直前および終了直後に

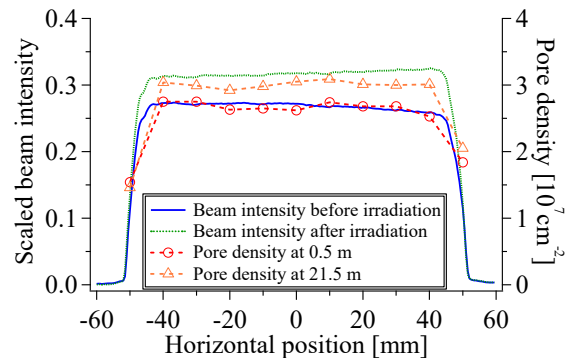


Figure 5: Horizontal relative intensity distributions of the beam measured using Gafchromic films before and after the RtoR irradiation, and the pore density distributions in the width direction right after the irradiation start (at 0.5 m) and before the irradiation end (at 21.5 m).

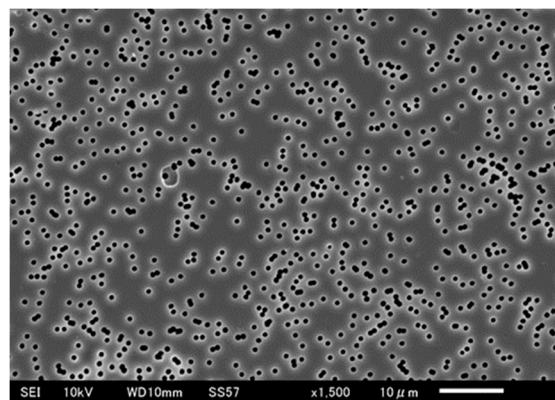


Figure 6: SEM image of a track-etched PET film (25 μ m in thickness) irradiated with 3.6-MeV/n Xe ion beam. The film was chemically etched using a 1.0-mol/L NaOH solution at 60 $^{\circ}$ C for 30 min. The diameter of resultant pores was estimated to be about 1 μ m from the image. The pore density was $3 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$, which was slightly lower than the estimated fluence of the ion beam.

Gafchromic フィルムで測定したビームの水平方向相対強度分布と RtoR 照射開始直後と終了直前の PET 試料における幅 (水平) 方向の穿孔密度を示す。穿孔密度分布がビーム強度分布によく一致するとともに、ビーム電流が増加したことも明確に反映されている。

作製されたイオン穿孔膜の SEM 写真を Figure 6 に示す。均一な直径 (約 1 μ m) を有する穿孔が形成されているのが分かる。このようにして、TIARA サイクロロンにおいて、非線形集束により形成した幅広均一ビーム照射を用いて、RtoR 搬送による長尺高分子フィルムの穿孔膜の作製に成功した。

3.3 低真空中でのイオン照射

大面積または幅広のビームの強度分布を計測するための空間を確保する必要性から、低真空中照射の場合、Ti 薄膜の窓から RtoR 試料表面までは約 30cm の距離がある。このため、試料に入射するビームのエネルギー

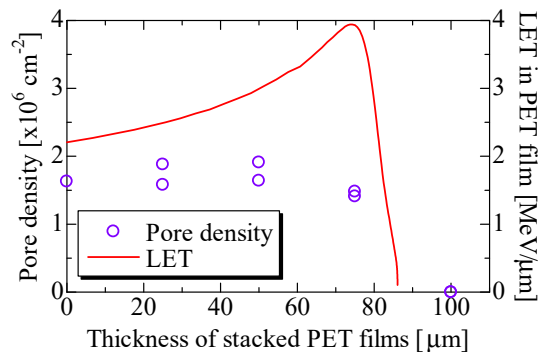


Figure 7: Pore density in both sides of stacked PET films ($25\mu\text{m}\times 4$ layers) irradiated with the Ar ion beam at 100 Pa and LET calculated using the SRIM program as a function of the thickness of stacked PET films. The kinetic energy of the Ar beam was 9.3 MeV/n before the Ti foil window.

は真空度に応じて変化する。低真空中における RtoR 照射のための予備的実験として、このような照射環境で試料におけるビームの飛程を PET フィルムの穿孔化により確かめた。

薄い PET フィルムを数枚重ねた試料を照射し、エッチングした各フィルムの両面について穿孔の有無を SEM 観察により調べた。9.3MeV/n の Ar イオンビームを 100Pa の低真空中に取り出して照射した場合の結果を Figure 7 に示す。重ねた試料の総厚さを横軸として穿孔密度をプロットした。比較のため、SRIM[14]を用いて計算した線エネルギー付与(LET)も併せてプロットした。厚さ 25 μm の PET フィルムを 4 枚重ねたところ、4 枚目の表面(総厚さ 75 μm)まで、設定フルエンス($1.8\times 10^6 \text{ cm}^{-2}$)にほぼ一致した密度で穿孔が形成されたが、計算の上の飛程を超える 4 枚目の裏面(総厚さ 100 μm)には穿孔が見られなかった。この場合、ビームの飛程は 75~100 μm の間であると見積もられ、SRIM の計算結果(飛程 86 μm)と矛盾しないことが確かめられた。同様に、いくつかの異なる真空度で測定し、構築した低真空照射環境において、十分な飛程精度でイオン照射が行えることが分かった。

ビームが十分な厚さの Ti 箔を透過できる必要性から、利用できるイオン種は比較的エネルギーの高い Ar に限られるものの、 $10^1\sim 10^4 \text{ Pa}$ の低真空環境(残留空気または窒素雰囲気)で、高真空の場合と同様に、長尺フィルムの RtoR 照射が可能であった。なお、化学エッチング処理は、穿孔膜の量産性を考慮した比較的厳しい条件(高濃度アルカリによる高温・短時間処理)で行われたため、形成された穿孔の真空度影響は見られていない。

この低真空中照射の結果は、チェンバー内の真空度を変えることやデグレダを挿入することにより、容易にビームエネルギーが変えられることを示している。すなわち、通常 3 時間程度を要するサイクロトロンでのビーム条件変更に頼ることなく、試料条件(組成、厚さ、密度等)に応じて、ビームのブラッグピーク位置が試料位置に一致するようエネルギーを容易に調整できる。これにより、Xe イオン照射に比べて LET の低い Ar イオン照射で LET を高めることができ、穿孔化のためのエッチング条件を緩和することができる。

4. まとめ

量研機構高崎研の TIARA サイクロトロンにおいて、8 極電磁石の非線形集束により形成した幅広均一ビームを用いて、長尺高分子フィルムの RtoR 搬送による連続照射を実証した。作製された多孔膜の穿孔密度は、試料の長手方向および幅方向ともに、ビーム電流および強度分布の変化の傾向によく一致することが確かめられた。ビーム、試料、照射雰囲気等の様々な条件下で、連続照射とイオン穿孔膜作製を達成することができた。特に、試料雰囲気(高真空または低真空)の違いについては、その利点や課題が確認された。TIARA サイクロトロンにおける将来の産業利用展開(機能性多孔膜を量産するためのイオン照射)に向けて一定の目処が得られた。

参考文献

- [1] たとえば、放射線化学のすすめ、日本放射線化学会編
- [2] S. Kurashima, T. Satoh, Y. Saito, and W. Yokota, *Quantum Beam Sci.* **1** (2017) 2; <http://dx.doi.org/10.3390/qubs1010002>
- [3] Y. Yuri, T. Ishizaka, T. Yuyama, I. Ishibori, S. Okumura and K. Yoshida, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A* **642** (2011) 10; <https://doi.org/10.1016/j.nima.2011.03.055>
- [4] N. Miyawaki S. Kurashima, A. Chiba, K. Yoshida, T. Yuyama, T. Ishizaka, K. Yamada, A. Yokoyama, Y. Hirano, T. Satoh, H. Kashiwagi, Y. Yuri, T. Ohkubo, I. Ishibori, S. Okumura, and T. Nara, in these proceedings, FSP031.
- [5] Y. Yuri, N. Miyawaki, T. Kamiya, W. Yokota, K. Arakawa, and M. Fukuda, *Phys. Rev. ST Accel. Beams* **10** (2007) 104001; <https://doi.org/10.1103/PhysRevSTAB.10.104001>
- [6] Y. Yuri, T. Yuyama, T. Ishizaka, I. Ishibori, and S. Okumura, *J. Phys. Soc. Jpn.* **81** (2012) 064501; <http://dx.doi.org/10.1143/JPSJ.81.064501>
- [7] Y. Yuri, T. Yuyama, T. Ishizaka, I. Ishibori, and S. Okumura, *Proceedings of the 11th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan*, 2014, p. 862; http://www.pasj.jp/web_publish/pasj2014/proceedings/PDF/SAP1/SAP119.pdf
- [8] T. Yuyama, Y. Yuri, T. Ishizaka, I. Ishibori and S. Okumura, *Proceedings of the 1st International Beam Instrumentation Conference*, 2012, p. 246; <http://accelconf.web.cern.ch/AccelConf/IBIC2012/papers/mopb75.pdf>
- [9] Y. Yuri, T. Yuyama, T. Ishizaka, M. Koka, and N. Yamada, *Proceedings of the 12th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan*, 2015, p. 420; http://www.pasj.jp/web_publish/pasj2015/proceedings/PDF/WEP0/WEP011.pdf
- [10] A. Niroomand-Rad, C. R. Blackwell, B. M. Coursey, K. P. Gall, J. M. Galvin, W. L. McLaughlin, A. S. Meigooni, R. Nath, J. E. Rodgers, and C. G. Soares, *Med. Phys.* **25** (1998) 2093; <https://doi.org/10.1118/1.598407>
- [11] Y. Yuri, T. Ishizaka, T. Yuyama, I. Ishibori, and S. Okumura, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A* **727** (2013) 40; <https://doi.org/10.1016/j.nima.2013.05.160>
- [12] 石坂知久, 百合庸介, 上松敬, 湯山貴裕, 清藤一, 奥村進, *Radioisotopes* **66** (2017) 251; <http://doi.org/10.3769/radioisotopes.66.251>
- [13] Y. Yuri, T. Ishizaka, T. Agematsu, T. Yuyama, H. Seito, and S. Okumura, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B* **406** (2017) 221; <http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2017.02.047>
- [14] <http://www.srim.org>